

© EPODOC / EPO

PN - JP2003055514 A 20030226  
 TI - RUBBER COMPOSITION  
 AB - PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a rubber composition as a nanocomposite comprising a rubber and layered clay mineral, where layer sheets of the organized layered clay mineral are homogeneously microdispersed in the butyl rubber. SOLUTION: This rubber composition comprises the butyl rubber having a specific phosphonium salt structure bearing phenyl group as the functional group and the layered clay mineral organized with an organic onium salt, or the like, to effect interlayer spacing expansion.  
 FI - C08K3/34; C08L23/32  
 PA - YOKOHAMA RUBBER CO LTD  
 IN - MARUYAMA TSUKASA; SEKINE YUKO; ISHIKAWA KAZUNORI  
 AP - JP20010244337 20010810  
 PR - JP20010244337 20010810  
 DT - I

© WPI / DERWENT

AN - 2004-285827 [27]  
 TI - Rubber composition for nano-complex of rubber/layered clay mineral finely dispersed in butyl rubber is prepared by just one stage of mixing  
 AB - JP2003055514 NOVELTY - Rubber composition comprising a liquid rubber prepared from a butyl rubber containing specific phosphonium salt and having an ammonium salt structure and layered clay mineral treated with organic onium salt to expand the distance between the layers, provides better dispersion ability and solubility in toluene.  
 - USE - None given.  
 - ADVANTAGE - Product attained to give a uniform and fine dispersion of organically treated layered clay mineral just by single stage of mixing, providing high solubility in toluene.  
 - (Dwg.0/0)  
 IW - RUBBER COMPOSITION NANO COMPLEX RUBBER LAYER CLAY MINERAL FINE DISPERSE BUTYL RUBBER PREPARATION ONE STAGE MIX  
 PN - JP2003055514 A 20030226 DW200427 C08L23/32 004pp  
 IC - C08K3/34 ; C08L23/32  
 PA - (YOKO ) YOKOHAMA RUBBER CO LTD

© PAJ / JPO

PN - JP2003055514 A 20030226  
 TI - RUBBER COMPOSITION  
 AB - PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a rubber composition as a nanocomposite comprising a rubber and layered clay mineral, where layer sheets of the organized layered clay mineral are homogeneously microdispersed in the butyl rubber.  
 - SOLUTION: This rubber composition comprises the butyl rubber having a specific phosphonium salt structure bearing phenyl group as the functional group and the layered clay mineral organized with an organic onium salt, or the like, to effect interlayer spacing expansion.  
 I - C08L23/32 ; C08K3/34  
 PA - YOKOHAMA RUBBER CO LTD:THE  
 IN - MARUYAMA TSUKASA; SEKINE YUKO; ISHIKAWA KAZUNORI  
 ABD - 20030603  
 ABV - 200306  
 AP - JP20010244337 20010810  
 PD - 2003-02-26

\* NOTICES \*

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the rubber constituent with which the stratified sheet of the stratified clay mineral organic--ization-processed in more detail using the rubber constituent containing the organic--ization-processed stratified clay mineral and the isobutylene isoprene rubber which has phosphonium salt structure in a functional group consists of nano complex of rubber / stratified clay mineral by which differential powder was carried out to homogeneity.

[0002]

[Description of the Prior Art] It is reported that the mechanical strength is more than an EQC, and gas barrier nature of the resin constituent which carried out melting kneading of resin and clay minerals (organic clay). such as a polyamide and polyethylene terephthalate, improves notably upwards (the edited by Chemical Society of Japan, a quarterly issue chemistry total theory, quality of an inorganic organic nano composite). It is supposed that the stratified sheet which forms the clay mineral is the improvement in this mechanical strength and gas barrier nature because a differential handbill, resin, and a clay mineral form nano complex in resin.

[0003] Moreover, the rubber constituent which distributed the clay mineral is reported into rubber, and it is reported that differential powder of the stratified sheet of a clay mineral is carried out into rubber (JP, 6-84456, B) or that the obtained gas barrier nature of a rubber constituent improves (\*\*\*\*\* No. 510421 [eight to ] official report). However, after making a clay mineral and liquid rubber react in a solvent and making the complex to which differential powder of the clay mineral was carried out form beforehand into liquid rubber, two steps of processes of kneading this complex and rubber were required of the conventional report of these rubber constituent. Thus, with the conventional technique, when making a clay mineral and liquid rubber react, the more industrial and simple process was needed from that it is necessary to use the mixed solution of organic solvents, such as toluene and dimethyl sulfoxide, and water as a solvent or, and two steps of processes of kneading of the formation, the complex, and rubber of complex having been required.

[0004] Moreover, although it is reported that gas barrier nature of the rubber constituent which mixed the organic--ization-processed clay mineral and isobutylene isoprene rubber improves, as for the fact that the nano complex of the rubber / stratified clay mineral which carried out differential powder is formed into isobutylene isoprene rubber, the stratified sheet of a clay mineral is not shown (U.S. Pat. No. 5,807,629 specification). Moreover, the fact that mix simply the clay mineral and rubber which were organic--ization-processed, and the nano complex of rubber / stratified clay mineral is formed by request is not acquired from a series of researches on the nano complex of old rubber / stratified clay mineral, either. Furthermore, although it is reported that gas barrier nature of the rubber constituent which mixed the sulfonation isobutylene isoprene rubber compounded separately and the organic--ization-processed clay mineral improves, the fact that the nano complex of the rubber / stratified clay mineral which carried out differential powder is formed into isobutylene isoprene rubber is not shown for the stratified sheet of that the reaction actuation for sulfonating isobutylene isoprene rubber is complicated, and a clay mineral, either (U.S. Pat. No. 5,807,629 specification).

[0005]

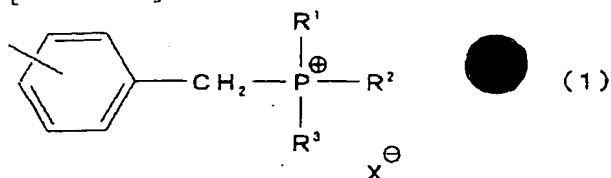
[Problem(s) to be Solved by the Invention] In this invention, the stratified sheet of the organic--ization-processed stratified clay mineral aims at obtaining the nano complex of rubber / stratified clay mineral by which homogeneity differential powder was carried out in isobutylene isoprene rubber.

[0006]

[Means for Solving the Problem] According to this invention, the rubber constituent which consists of isobutylene isoprene rubber which has phosphonium salt structure as a functional group, and an organic--ization-processed stratified clay mineral is offered.

[0007] Moreover, according to this invention, said rubber constituent whose phosphonium salt structure which is a functional group is the structure of the following type 1 is offered.

[Formula 2]



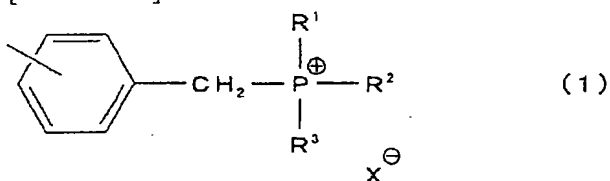
R1, R2, and R3 are the hydrocarbon groups of carbon numbers 1-18 among a formula, and X is Cl, Br, I, BF<sub>4</sub>, and PF<sub>6</sub>.

[0008]

[Embodiment of the Invention] In this invention, if the isobutylene isoprene rubber which has phosphonium salt structure as a functional group, and the organic-ization-processed stratified clay mineral are kneaded, the stratified sheet of the clay mineral will find out that the rubber / clay nano complex by which differential powder was carried out can be formed.

[0009] The isobutylene isoprene rubber which has phosphonium salt structure as a functional group as shown in the following formulas 1 as denaturation isobutylene isoprene rubber used by this invention can be used effectively.

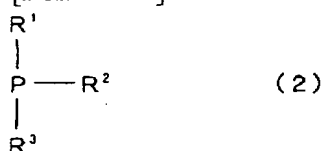
[Formula 3]



R1, R2, and R3 are the hydrocarbon groups of carbon numbers 1-18 among a formula, and X is Cl, Br, I, BF<sub>4</sub>, and PF<sub>6</sub>.

[0010] The thing to which the phosphine compound beforehand shown in halogenation isobutylene isoprene rubber and the following type 2 was made to react may be used for the isobutylene isoprene rubber which has the phosphonium salt structure of using by this invention, or in case it kneads halogenation isobutylene isoprene rubber and the organic-ization-processed stratified clay mineral, it may add the phosphine compound shown in the following formula 2, and isobutylene isoprene rubber and the thing made to react may be used for it during kneading.

[Formula 4]



R1, R2, and R3 are the hydrocarbon groups of the carbon atoms 1-18 among a formula.

[0011] Preparation of isobutylene isoprene rubber which isobutylene isoprene rubber and a phosphine compound are made to react beforehand, and has phosphonium salt structure may be performed under a solvent or a non-solvent. Although it will not be limited as a solvent to be used especially if isobutylene isoprene rubber and a phosphine compound dissolve, a hydrocarbon solvent is used preferably. They are toluene and a xylene especially preferably. 50 degrees C - 250 degrees C of reaction temperature are 70 degrees C - 200 degrees C preferably. The isobutylene isoprene rubber which has the HOSUONIUMU salt structure in this invention may be used independently, or it may use together with isobutylene isoprene rubber and/or halogenation isobutylene isoprene rubber, and it may be used.

[0012] The organic-ization-processed stratified clay mineral which is used by this invention is clay made organic, when an organic-ized agent carries out ionic bond to the sheet front face of the layer structure which constitutes a clay mineral. When an organic-ized agent enters between the sheets which constitute a clay mineral, between that sheet is extended by this organic-ization and this is kneaded with the isobutylene isoprene rubber of this invention by it, while a sheet exfoliates, it is mixed into rubber. As this organic-ized agent, it is desirable to use an organic onium salt, and organic ammonium ion, the organic sulfonium ion, organic phosphonium ion, pyridinium ion, etc. can be used as organic onium ion.

[0013] There are smectite systems, such as a montmorillonite, saponite, a high deweylite, a NONTOLITE, hectorite, and a stevensite, a vermiculite, halloysite, etc. in said stratified clay mineral used by this invention, and either nature or composition can be used for it. Moreover, in this invention, a kind of these stratified clay

minerals or two sorts or more may be used.

[0014] In the rubber constituent of this invention, a common Banbury mixer, the Brabender mixer, or a twin screw extruder is used. Although the rubber / clay nano complex with which differential powder of the stratified sheet of the stratified clay mineral organic--ization-processed by blending and kneading at once a compound and the organic--ization-processed stratified clay minerals, such as triphenyl phosphine which gives phosphonium salt structure to isobutylene isoprene rubber and isobutylene isoprene rubber, was carried out are obtained In this invention, the compound which gives phosphonium salt structure to the isobutylene isoprene rubber to the isobutylene-isoprene-rubber 100 weight section 0.1 - 20 weight section, desirable -- 0.5 - 15 weight section and the organic--ization-processed stratified clay mineral -- 0.1 - 70 weight section -- it is used, carrying out 0.5-50 weight section combination preferably.

[0015] In addition to the above-mentioned indispensable component, the various compounding agents and additive which are blended with a rubber constituent with still more common reinforcing agents, such as carbon black YASHIRIKA, vulcanization or cross linking agent, vulcanization or bridge formation accelerator, various oil, antioxidant, bulking agent, softener, plasticizer, etc. can be blended with the rubber constituent of this invention, and the loadings of these compounding agents and an additive can also be made into the general amount suitable for the application.

[0016]

[Example] It cannot be overemphasized that it is not what limits the range of this invention to these examples hereafter although an example and the example of a comparison explain this invention further.

[0017] Temperature was made into 80 degrees C after adding dioleoyl dimethyl ammonium chloride (Nippon Oil & Fats make, cation 2-OLR, 75% inclusion) 93.2g to preparation water 3L of the organic--ization-processed stratified compound (organic-ized clay). Organic-ized processing of a stratified clay mineral was performed by adding gradually stratified clay mineral Na mold montmorillonite (Kunimine Industries make, KUNIPIAF) 100g in this water solution, and stirring at 80 degrees C in it for 5 hours. After filtration and water washed obtained sediment, the clay mineral organic--ization-processed by dioleoyl dimethyl ammonium ion was obtained by drying.

[0018] The stratified clay mineral (the above-mentioned organic-ized clay) organic--ization-processed with isobutylene isoprene rubber and triphenyl phosphine with the compounding ratio shown in the examples 1-2 and one-to two or less example [ of a comparison ] table 1 was mixed with the Banbury mixer. By analyzing the obtained rubber sheet with an X-ray diffraction method, the dispersibility of the stratified clay mineral in a rubber sheet was checked. The case where the peak which originates in a stratified clay mineral with an X-ray diffraction method disappeared was made into O, and the case where the peak originating in a stratified clay mineral remained was shown as x. Moreover, in order to check whether the obtained rubber sheet is gelling, some rubber sheets were extracted and it added in the toluene solution. What made O what rubber dissolved in toluene after neglect on the 1st, and remained in part, without dissolving was made into x (gelation).

[0019]

[Table 1]

表 1

	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2
ブチルゴム EXXPRO <sup>TM</sup> Brill <sup>TM</sup>	100	30 70	100	30 70
有機クレイ	8	8	8	8
トリフェニルホスフィン ジメチルステアリルアミン	5	1.6	5	1.8
分散性	○	○	○	○
トルエン溶解性	○	○	x	x

(註) 1) イソブチレン-*p*-メチルステレン共重合体の臭素化物 (エクソン化学製)

[0020]

[Effect of the Invention] It turns out that the rubber constituent of this invention can be obtained only by blending at once and mixing the-phosphine compound shown in isobutylene isoprene rubber and the above-mentioned formula 2, and the organic--ization-processed stratified clay mineral, and it excels in the dispersibility of a stratified clay mineral, and the solubility of toluene as shown in the above-mentioned table 1. It turns out that it does not dissolve in toluene but the rubber constituent of the examples 1-2 of a comparison mixed on the other hand using the dimethyl stearyl amine which gives ammonium salt structure into

isobutylene isoprene rubber gels although the dispersibility of a stratified clay mineral is good.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

 CLAIMS
 

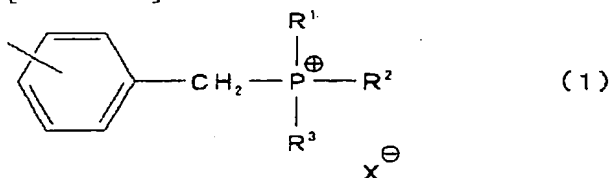
---

[Claim(s)]

[Claim 1] The rubber constituent which consists of isobutylene isoprene rubber which has phosphonium salt structure as a functional group, and an organic-ization-processed stratified clay mineral.

[Claim 2] The rubber constituent according to claim 1 whose phosphonium salt structure which is a functional group is the structure of the following type 1.

[Formula 1]



R1, R2, and R3 are the hydrocarbon groups of carbon numbers 1-18 among a formula, and X is Cl, Br, I, BF4, and PF6.

---

[Translation done.]

A 33

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-55514

(P2003-55514A)

(43) 公開日 平成15年2月26日 (2003.2.26)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	キーワード (参考)
C 0 8 L 23/32		C 0 8 L 23/32	4 J 0 0 2
C 0 8 K 3/34		C 0 8 K 3/34	

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願2001-244337 (P2001-244337)

(22) 出願日 平成13年8月10日 (2001.8.10)

(71) 出願人 000006714

横浜ゴム株式会社

東京都港区新橋5丁目36番11号

(72) 発明者 丸山 司

神奈川県平塚市追分2番1号 横浜ゴム株式会社平塚製造所内

(72) 発明者 関根 優子

神奈川県平塚市追分2番1号 横浜ゴム株式会社平塚製造所内

(74) 代理人 100077517

弁理士 石田 敬 (外4名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ゴム組成物

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 有機化処理された層状粘土鉱物の層状シートが、ブチルゴム中に均一に微分散されたゴム/層状粘土鉱物からなるナノ複合体を提供する。

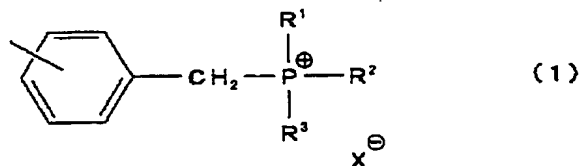
【解決手段】 官能基としてフェニル基を有する特定なホスホニウム塩構造を有するブチルゴム、および有機オニウム塩などで有機化処理され層間距離を拡張した層状粘土鉱物からなるゴム組成物。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 官能基としてホスホニウム塩構造を有するブチルゴムおよび有機化処理された層状粘土鉱物からなるゴム組成物。

【請求項2】 官能基であるホスホニウム塩構造が下記式1の構造である、請求項1に記載のゴム組成物。

## 【化1】



式中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$ は、炭素数1～18の炭化水素基であり、 $\text{X}$ は、 $\text{Cl}$ 、 $\text{Br}$ 、 $\text{I}$ 、 $\text{BF}_4$ 、 $\text{PF}_6$ である。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機化処理された層状粘土鉱物を含むゴム組成物、更に詳しくは、官能基にホスホニウム塩構造を有するブチルゴムを用いて、有機化処理された層状粘土鉱物の層状シートが均一に微分散されたゴム/層状粘土鉱物のナノ複合体からなるゴム組成物に関する。

## 【0002】

【従来の技術】ポリアミド、ポリエチレンテレフタレート等の樹脂と粘土鉱物（有機クレイ）とを熔融混練した樹脂組成物は、その機械的強度が同等以上である上に、ガスバリアー性が顕著に向上することが報告されている（日本化学会編、季刊化学総説、無機有機ナノ複合物質）。この機械的強度、ガスバリアー性の向上は、粘土鉱物を形成している層状シートが樹脂中で微分散し、樹脂と粘土鉱物がナノ複合体を形成しているためであるとされている。

【0003】また、ゴム中に粘土鉱物を分散させたゴム組成物に関しても報告されており、粘土鉱物の層状シートがゴム中に微分散されていること（特公平6-84456号公報）や、得られたゴム組成物のガスバリアー性が向上すること（特表平8-510421号公報）が報告されている。しかしながら、これらゴム組成物に関する従来の報告では、粘土鉱物と液状ゴムとを溶媒中で反応させ、液状ゴム中に粘土鉱物を微分散させた複合体を予め形成させた後、この複合体とゴムを混練りする2段階のプロセスが必要であった。このように、従来技術では、粘土鉱物と液状ゴムとを反応させる際、溶媒としてトルエン、ジメチルスルホキシド等の有機溶媒と水との混合溶液を使う必要があることや、複合体の形成と複合体とゴムの混練りという2段階のプロセスが必要であったことから、より工業的で簡便なプロセスを必要としていた。

【0004】また、有機化処理された粘土鉱物とブチル

ゴムとを混合したゴム組成物も、ガスバリアー性が向上することが報告されているが、粘土鉱物の層状シートがブチルゴム中に微分散したゴム/層状粘土鉱物のナノ複合体が形成されている事実は示されていない（米国特許第5,807,629号明細書）。また、これまでのゴム/層状粘土鉱物のナノ複合体に関する一連の研究から、有機化処理された粘土鉱物とゴムを単純に混合したのみでゴム/層状粘土鉱物のナノ複合体が形成される事実も得られていない。更に、別途合成されたスルホン化ブチルゴムと有機化処理された粘土鉱物とを混合したゴム組成物もガスバリアー性が向上することが報告されているが、ブチルゴムをスルホン化するための反応操作が煩雑であること、粘土鉱物の層状シートがブチルゴム中に微分散したゴム/層状粘土鉱物のナノ複合体が形成されている事実も示されていない（米国特許第5,807,629号明細書）。

## 【0005】

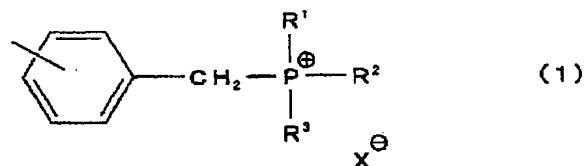
【発明が解決しようとする課題】本発明では、有機化処理された層状粘土鉱物の層状シートがブチルゴム中で均一に微分散されたゴム/層状粘土鉱物のナノ複合体を得ることを目的とする。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明によれば、官能基としてホスホニウム塩構造を有するブチルゴムおよび有機化処理された層状粘土鉱物からなるゴム組成物が提供される。

【0007】また、本発明によれば、官能基であるホスホニウム塩構造が、下記式1の構造である前記ゴム組成物が提供される。

## 【化2】



式中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$ は、炭素数1～18の炭化水素基であり、 $\text{X}$ は、 $\text{Cl}$ 、 $\text{Br}$ 、 $\text{I}$ 、 $\text{BF}_4$ 、 $\text{PF}_6$ である。

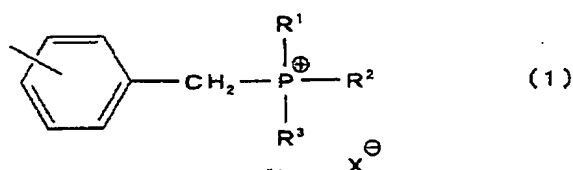
## 【0008】

【発明の実施の形態】本発明では、官能基としてホスホニウム塩構造を有するブチルゴムと有機化処理された層状粘土鉱物とを混練すると、その粘土鉱物の層状シートが微分散されたゴム/粘土ナノ複合体を形成できることを見出したものである。

【0009】本発明で用いる変性ブチルゴムとしては、以下の式1に示されるような、官能基としてホスホニウム塩構造を有するブチルゴムを有効に使用することができる。

## 【化3】

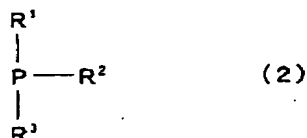




式中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$ は、炭素数1～18の炭化水素基であり、 $\text{X}$ は、 $\text{Cl}$ 、 $\text{Br}$ 、 $\text{I}$ 、 $\text{BF}_4$ 、 $\text{PF}_6$ である。

【0010】本発明で用いるホスホニウム塩構造を有するブチルゴムは、予めハロゲン化ブチルゴムと下記式2に示されるホスフィン化合物を反応させたものを用いてもよいし、または、ハロゲン化ブチルゴムと有機化処理された層状粘土鉱物とを混練する際に下記式2に示されるホスフィン化合物を添加し、混練中にブチルゴムと反応させたものを用いてもよい。

【化4】



式中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ および $\text{R}^3$ は、炭素原子1～18の炭化水素基である。

【0011】予めブチルゴムとホスフィン化合物を反応させてホスホニウム塩構造を有するブチルゴムの調製は、溶媒下あるいは無溶媒下で行なってもよい。使用する溶媒としては、ブチルゴムとホスフィン化合物が溶解するならば特に限定されないが、炭化水素溶媒が好ましく用いられる。特に好ましくは、トルエン、キシレンである。反応温度は、 $50^\circ\text{C}$ ～ $250^\circ\text{C}$ 、好ましくは $70^\circ\text{C}$ ～ $200^\circ\text{C}$ である。本発明におけるホスホニウム塩構造を有するブチルゴムは、単独で用いてもよいし、あるいはブチルゴムおよび／またはハロゲン化ブチルゴムと併用して用いてもよい。

【0012】本発明で用いる有機化処理された層状粘土鉱物とは、粘土鉱物を構成する層状構造のシート表面に有機化剤がイオン結合することによって有機化された粘土のことである。この有機化によって粘土鉱物を構成するシート間に有機化剤が入り込み、そのシート間が拡張され、これを本発明のブチルゴムと混練するときは、シートが剥離しながらゴム中に混入される。かかる有機化剤としては、有機オニウム塩を用いることが好ましく、有機オニウムイオンとしては、有機アンモニウムイオン、有機スルホニウムイオン、有機ホスホニウムイオン、ビリジニウムイオン等を用いることができる。

【0013】本発明で用いる前記層状粘土鉱物には、モンモリロナイト、サボナイト、ハイダライト、ノントライト、ヘクトライト、ステブンスサイト等のスメクタイト系や、バーミキュライト、ハロサイト等があり、天然または合成のいずれも使用することができる。また、

本発明では、これら層状粘土鉱物の一種あるいは二種以上が用いられてよい。

【0014】本発明のゴム組成物では、一般的なバンバリーミキサー、ブラベンダーミキサーあるいは二軸押出機等を用いて、ブチルゴム、ブチルゴムにホスホニウム塩構造を付与するトリフェニルホスフィン等の化合物および有機化処理された層状粘土鉱物を一度に配合、混練することによって、有機化処理された層状粘土鉱物の層状シートが微分散されたゴム／粘土ナノ複合体が得られるが、本発明では、ブチルゴム100重量部に対して、そのブチルゴムにホスホニウム塩構造を付与する化合物を0.1～20重量部、好ましくは0.5～15重量部、有機化処理された層状粘土鉱物を0.1～70重量部、好ましくは0.5～50重量部配合して使用される。

【0015】本発明のゴム組成物には、上記必須成分に加えて、更に、カーボンブラックやシリカ等の補強剤、加硫または架橋剤、加硫または架橋促進剤、各種オイル、老化防止剤、充填剤、軟化剤、可塑剤等の一般のゴム組成物に配合される各種配合剤および添加剤を配合することができ、これら配合剤、添加剤の配合量もその用途に適した一般的な量とすることができる。

【0016】

【実施例】以下、実施例および比較例によって本発明を更に説明するが、本発明の範囲をこれらの実施例に限定するものでないことは言うまでもない。

【0017】有機化処理された層状化合物（有機化クレイ）の調製

水3Lに、ジオレイルジメチルアンモニウムクロライド（日本油脂製、カチオン2-OLR、75%含有物）93.2gを添加した後、温度を $80^\circ\text{C}$ とした。この水溶液に、層状粘土鉱物Na型モンモリロナイト（クニミネ工業製、クニピアF）100gを徐々に添加し、 $80^\circ\text{C}$ で5時間攪拌することにより、層状粘土鉱物の有機化処理を行なった。得られた沈殿物をろ過および水で洗浄した後、乾燥することによりジオレイルジメチルアンモニウムイオンで有機化処理された粘土鉱物を得た。

【0018】実施例1～2および比較例1～2

以下の表1で示す配合比で、ブチルゴムとトリフェニルホスフィンと有機化処理された層状粘土鉱物（上記有機化クレイ）をバンバリーミキサーで混合した。得られたゴムシートをX線回折法で解析することにより、ゴムシート中の層状粘土鉱物の分散性を確認した。X線回折法で層状粘土鉱物に由来するピークが消失した場合を○とし、層状粘土鉱物に由来するピークが残っている場合を×として示した。また、得られたゴムシートがゲル化しているか確認するため、ゴムシートの一部を採取し、トルエン溶液中に添加した。1日放置後、ゴムがトルエンに溶解したものを○とし、溶解せずに一部残存したものを×（ゲル化）とした。

【0019】

【表1】

表1

	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2
ブチルゴム EXXPRO <sup>TM</sup> Br IIR	100	30 70	100	30 70
有機クレイ	8	8	8	8
トリフェニルホスフィン ジメチルステアリルアミン	5	1.6	5	1.8
分散性	○	○	○	○
トルエン溶解性	○	○	×	×

(註) 1) イソブチレン-p-メチルスチレン共重合体の臭素化物(エクソン化学製)

【0020】

【発明の効果】上記表1に示されるとおり、本発明のゴム組成物は、ブチルゴムと上記式2に示すホスフィン化合物と有機化処理された層状粘土鉱物を一度に配合、混合するだけで得ることができ、層状粘土鉱物の分散性およびトルエンの溶解性において優れていることがわか

る。一方、ブチルゴム中にアンモニウム塩構造を付与するジメチルステアリルアミンを用いて混合した比較例1～2のゴム組成物は、層状粘土鉱物の分散性は良いものの、トルエンに溶解せずゲル化してしまうことがわかる。

フロントページの続き

(72)発明者 石川 和憲  
神奈川県平塚市追分2番1号 横浜ゴム株  
式会社平塚製造所内

Fターム(参考) 4J002 BB181 BB201 BB261 DJ036  
FB086 FD01

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☒ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**